

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-327598

(P2000-327598A)

(43) 公開日 平成12年11月28日 (2000. 11. 28)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

ターミナル (参考)

C 0 7 C 15/58

C 0 7 C 15/58

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

33/22

6 1 5

33/22

B

B

D

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願2000-46240 (P2000-46240)

(22) 出願日 平成12年2月23日 (2000. 2. 23)

(31) 優先権主張番号 特願平11-72250

(32) 優先日 平成11年3月17日 (1999. 3. 17)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005049

シャープ株式会社

大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号

(71) 出願人 597011728

城戸 淳二

奈良県北葛城郡広陵町馬見北9-4-3

(72) 発明者 川瀬 徳隆

大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号

シャープ株式会社内

(74) 代理人 100065248

弁理士 野河 信太郎

最終頁に続く

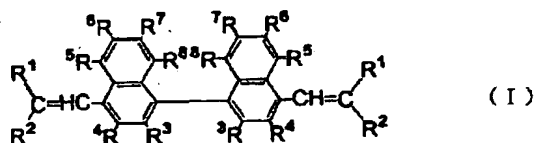
(54) 【発明の名称】 ジスチリルアリーレン誘導体および有機電界発光素子

(57) 【要約】

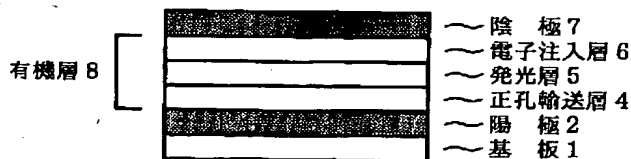
【課題】 低電圧駆動ができ、任意の発光色を得ることができる、大きな発光輝度を有し、繰り返し使用時の安定性 (発光寿命および発光安定性) に優れた有機電界発光素子を提供することを課題とする。

【解決手段】 一般式 (I)

【化1】



(式中、R¹ および R² は同一または異なって、水素原子、炭素数 1～6 のアルキル基、置換もしくは非置換の炭素数 6～20 のアリール基、または芳香族複素環基であり；R³～R⁸ は同一または異なって、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基またはヒドロキシ基である) で表されるジスチリルアリーレン誘導体を提供することにより、上記課題を解決する。

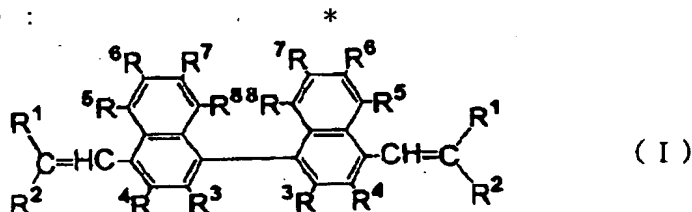


(2)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 (I) :

* 【化1】



(式中、 R^1 および R^2 は同一または異なって、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、または置換もしくは無置換の炭素数2～18の芳香族複素環基であり； $R^3 \sim R^8$ は同一または互いに異なって、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基またはヒドロキシ基である) で表されるジスチリルアリーレン誘導体。

【請求項2】 一般式 (I) において、 R^1 および R^2 がフェニル基であり、かつ $R^3 \sim R^8$ が水素原子である請求項1記載のジスチリルアリーレン誘導体。

【請求項3】 一般式 (I) において、 R^1 および R^2 がp-トリル基であり、かつ $R^3 \sim R^8$ が水素原子である請求項1記載のジスチリルアリーレン誘導体。

【請求項4】 基板上に陽極、少なくとも1層の有機層および陰極がこの順で積層された有機電界発光素子であって、前記有機層が、請求項1～3のいずれか1つに記載のジスチリルアリーレン誘導体を含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項5】 ジスチリルアリーレン誘導体が、発光物質として用いられる請求項4記載の有機電界発光素子。

【請求項6】 有機層が、正孔注入層および正孔輸送層から選択される少なくとも1層、発光層および少なくとも1層の電子注入層からなり、かつ前記有機層のいずれか1つの層がジスチリルアリーレン誘導体を含有することを特徴とする請求項4または5に記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 発光層が、ジスチリルアリーレン誘導体を含有する請求項6記載の有機電界発光素子。

【請求項8】 有機層が、正孔注入層および正孔輸送層から選択される少なくとも1層、発光層からなり、かつ前記有機層のいずれか1つの層がジスチリルアリーレン誘導体を含有することを特徴とする請求項4または5に記載の有機電界発光素子。

【請求項9】 発光層が、ジスチリルアリーレン誘導体を含有する請求項8記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ジスチリルアリーレン誘導体および有機電界発光素子に関する。さらに詳しくは、本発明は、有機化合物からなる発光層に電界をかけて光を放出する薄膜型デバイス、すなわち平面光源

や表示に使用可能な有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、電界発光素子としては、II-IV族化合物半導体であるZnS、CaSまたはSrSなどに、発光中心であるMnや希土類元素をドーブした無機化合物を用いた無機電界発光素子が一般的であった。しかし、無機電界発光素子は、交流駆動を必要とする、駆動電圧が高い、フルカラー化が困難であるという問題点を有していた。

【0003】 一方、有機化合物を用いた有機電界発光素子は、無機電界発光素子に比べて駆動電圧が高い、発光輝度や発光効率が低い、特性劣化が著しいという問題点を有し、実用化には至っていなかった。しかし、近年、駆動電圧を低電圧化し得る電界発光素子用の有機化合物の研究がなされている(例えば、C. W. Tang and S. A. VanSlyke, Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987) 参照)。

【0004】 一般に電界発光素子は、発光層を挟んだ一対の対向電極から構成される。そして、発光は、対向電極間に電界が印加されることにより、陰極側から注入される電子と陽極側から注入される正孔とが、発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出することにより発現する。

【0005】 したがって、有機電界発光素子の場合、その発光層に用いる有機化合物の分子構造を変化させることにより、任意の発光色を容易に得ることができることから、フルカラー表示素子としての用途が有望視されている。また、有機電界発光素子は、自己発光型の表示が鮮明であり、その実用化の研究が積極的になされている(例えば、特許公報第2554771号参照)。

【0006】 しかしながら、現在までの有機電界発光素子は、構成の改善により発光強度は改良されてきているが、未だに十分な発光輝度を有していない。また、低分子の有機化合物を用いる場合、駆動時のジュール熱のために有機化合物が結晶化して層が剥離するなど、繰り返し使用時の安定性に劣るという大きな問題を有している。したがって、より大きな発光輝度を有し、繰り返し使用時の安定性に優れた発光物質、電荷輸送(注入)物質および有機電界発光素子の開発が望まれている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、低電圧駆動

(3)

3

ができ、任意の発光色を得ることができる、大きな発光輝度を有し、繰り返し使用時の安定性（発光寿命および発光安定性）に優れた有機電界発光素子を提供することを課題とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前述のような優れた特徴を有する有機電界発光素子を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、中心骨格にピナフチレン基を有*

4

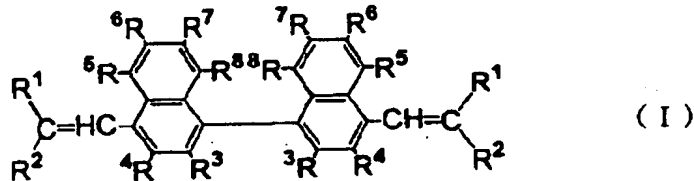
*するジスチリルアリーレン誘導体を用いた有機電界発光素子が、大きな発光輝度を有し、発光強度が強く、繰り返し使用時においても安定性に優れていることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】かくして、本発明によれば、一般式

(I) :

【0010】

【化2】



【0011】(式中、 R^1 および R^2 は同一または異なって、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、または置換もしくは無置換の炭素数2～18の芳香族複素環基であり； $R^3 \sim R^8$ は同一または互いに異なって、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基またはヒドロキシ基である)で表されるジスチリルアリーレン誘導体が提供される。

【0012】また、本発明によれば、基板上に陽極、少なくとも1層の有機層および陰極がこの順で積層された有機電界発光素子であって、前記有機層が、上記のジスチリルアリーレン誘導体を含有することを特徴とする有機電界発光素子が提供される。

【0013】

【発明の実施の形態】本発明のジスチリルアリーレン誘導体は、一般式(I)で表される。一般式(I)における R^1 および R^2 の「炭素数1～6のアルキル基」としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、tert-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基などが挙げられる。

【0014】一般式(I)における R^1 および R^2 の「炭素数6～20のアリール基」としては、例えば、フェニル基、(1-または2-)ナフチル基、(1-, 2-または9-)アントリル基、(1-, 2-, 3-, 4-または9-)フェナントリル基、(1-または2-)ピレニル基、(2-, 3-または4-)ピフェニル基、テルフェニル基、(1-, 2-または3-)ペリレニル基などが挙げられる。置換基としては、ハロゲン原子、炭素数6～20のアリール基、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～20のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、置換もしくは非置換のアミノ基、およびヒドロキシ基が挙げられる。

【0015】ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素

原子、臭素原子およびヨウ素原子などが、炭素数6～20のアリール基としては、 R^1 および R^2 に例示のものが、また、炭素数1～6のアルキル基としては、 R^1 および R^2 に例示のものが挙げられる。炭素数1～6のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、tert-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、イソヘキシルオキシ基などが挙げられる。

【0016】炭素数7～20のアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、トルイルメチル基、フェニルエチル基などが、炭素数6～18のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ナフトキシ基などが挙げられる。置換アミノ基としては、例えば、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基などが挙げられる。

【0017】この「アリール基の置換基」はモノ置換体に限らず、ジ置換体およびトリ置換体であってもよい。複数の置換基は同一または異なる置換基であってもよく、その置換位置は、立体障害があり、かつ合成面で問題があるオルト位ではなく、パラ位およびメタ位が好ましい。置換基としては、電子供与基が好ましく、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基などのアルキル基、メトキシ基やエトキシ基などのアルコキシ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、フェニル基などが挙げられる。

【0018】一般式(I)における R^1 および R^2 の「芳香族複素環基」としては、例えば、ピリジル基、キノリル基、カルバゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、チエニル基などが挙げられる。一般式(I)における R^1 および R^2 としては、上記の置換基の中でも、水素原子、メチル基、フェニル基、p-トリル基、4-メトキシーフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基および4-ピフェニル基が好ましく、フェニル基およびp-トリル基が特に好ましい。

(4)

5

【0019】一般式(I)における $R^3 \sim R^8$ の「ハロゲン原子」としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子およびヨウ素原子が挙げられる。一般式(I)における $R^3 \sim R^8$ の「炭素数1~6のアルキル基」としては、 R^1 および R^2 に例示のものが挙げられる。

【0020】一般式(I)における $R^3 \sim R^8$ の「炭素数1~6のアルコキシ基」としては、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、イソブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、*n*-ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、*t* 10 *ert*-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、イソヘキシルオキシ基などが挙げられる。一般式(I)における $R^3 \sim R^8$ としては、上記の置換基の中でも、水素原子が特に好ましい。

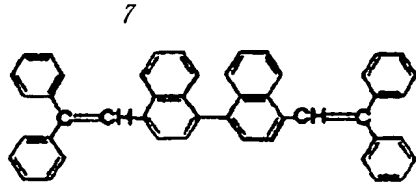
6

【0021】一般式(I)で表されるジスチリルアリーレン誘導体は、1分子中に2つの $=C=CH-$ 基を有し、この基に結合する置換基 R^1 および R^2 が異なる場合、4通りの組み合わせ(シス-シス、トランス-シス、シス-トランスおよびトランス-トランスの組み合わせ)の幾何異性体が存在する。本発明のジスチリルアリーレン誘導体は、上記のいずれの幾何異性体であってもよく、またこれらの混合物であってもよい。

【0022】一般式(I)で表されるジスチリル誘導体の具体例を以下に示す。しかしながら、これらの化合物の例示によって、本発明が限定されるものではない。

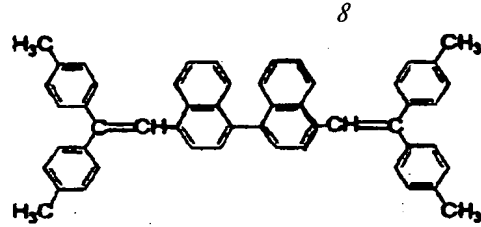
【0023】

【化3】

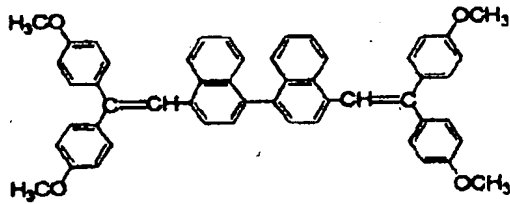


化合物 (1)

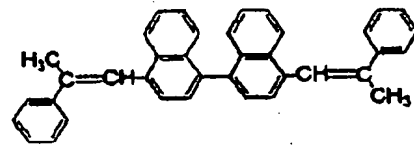
(5)



化合物 (2)



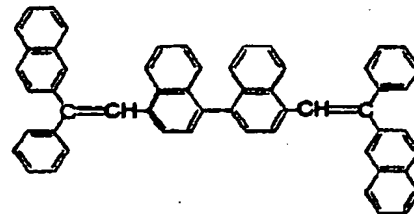
化合物 (3)



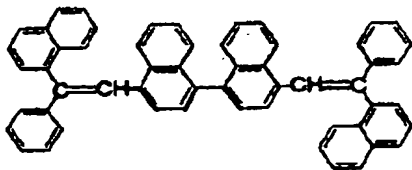
化合物 (4)



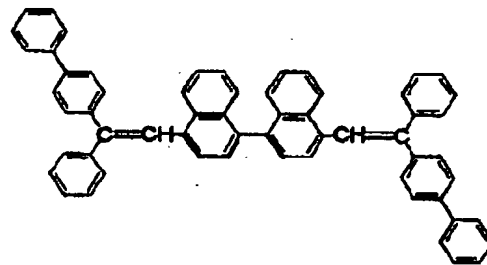
化合物 (5)



化合物 (6)



化合物 (7)



化合物 (8)

【0024】上記の例示化合物の中で、 R^1 および R^2 がフェニル基であり、かつ $R^3 \sim R^8$ が水素原子である化合物 (1)、ならびに R^1 および R^2 がp-トリル基であり、かつ $R^3 \sim R^8$ が水素原子である化合物 (2) が特に好ましい。

【0025】本発明のジスチリル誘導体の合成法につい

40 ては、それ自体公知の方法を利用することができるが、以下の2つの合成法が収率の点で特に有利である。

【0026】(第1の合成法) 一般式 (II) :

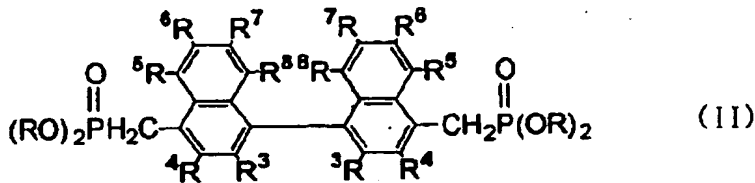
【0027】

【化4】

(6)

9

10

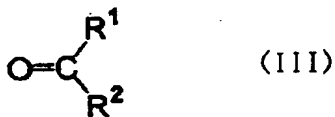


【0028】(式中、Rは炭素数1～4のアルキル基またはフェニル基であり；R³～R⁸は一般式(I)と同義である)で表されるホスホン酸エステルと、一般式

(III)：

【0029】

【化5】



【0030】(式中、R¹およびR²は一般式(I)と同義である)で表されるカルボニル化合物とを、塩基の存在下で縮合反応させること(Wittig反応またはWittig-Horner反応)により、本発明のジスチリル誘導体を合成することができる。

【0031】一般式(II)におけるRの「炭素数1～4のアルキル基」としては、一般式(I)のR¹およびR²に例示のアルキル基のうち、炭素数1～4のものが挙げられる。

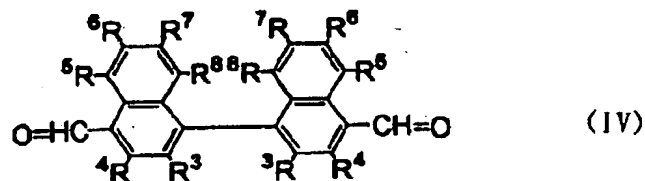
*【0032】なお、一般式(II)のホスホン酸エステルは、例えば、次のようにして得られる。まず、1-ハロ-4-メチルナフタレン誘導体を、ジエチルエーテルやテトラヒドロフランなどのエーテル中でマグネシウムと反応させて、対応するグリニャール化合物に転化し、次いでNi(PPh₃)₂Cl₂やNi(PPh₃)₂Br₂などのニッケル含有触媒の存在下で還元的にカップリング反応させて、4,4'-ジメチル-1,1'-ビナフチル誘導体を得る。

【0033】次いで、得られた4,4'-ジメチル-1,1'-ビナフチル誘導体のメチル基をハロゲンまたはN-ハロスクシンイミドなどでハロゲン化して、4,4'-ビス(ハロメチル)-1,1'-ビナフチル誘導体を得る。さらに、4,4'-ビス(ハロメチル)-1,1'-ビナフチル誘導体と亜リン酸トリメチルなどを反応させて、ホスホン酸エステルを得る。

【0034】(第2の合成法)一般式(IV)：

【0035】

【化6】

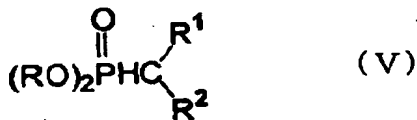


【0036】(式中、R³～R⁸は一般式(I)と同義である)で表されるカルボニル化合物と、一般式

(V)：

【0037】

【化7】



【0038】(式中、Rは一般式(II)と同義であり；R¹およびR²は一般式(I)と同義である)で表されるホスホン酸エステルとを、塩基の存在下で縮合反応させること(Wittig-Horner反応)により、本発明のジスチリル誘導体を合成することができる。

【0039】なお、一般式(IV)の化合物は、一般式(I)の前駆体である4,4'-ビス(ハロメチル)-1,1'-ビナフチル誘導体を、脂肪族ニトロ化合物のナトリウム塩(例えば、2-ニトロプロパンのナトリウム塩)と反応させ、ハロメチル基をアルデヒド基に置換

させることにより得ることができる。

【0040】上記の合成法1および合成法2においては、通常、反応溶媒が用いられる。反応溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、2-メトキシエタノールなどのアルコール類、1,2-ジメトキシエタン、ビス(2-メトキシエチル)エーテル、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフランなどのエーテル類、トルエン、キシレン、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、N-メチルピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン(エチレン尿素)などが挙げられ、中でもテトラヒドロフランおよびジメチルスルホキシドが好ましい。

【0041】また、塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムアミド、n-ブチリチウム、ナトリウムメトキシド、カリウムt-ブトキシドなどが挙げられ、n-ブチリチウムおよびカリウムt-ブトキシドが特に好ましい。

【0042】反応温度は、使用する原料の種類などによ

(7)

11

り異なり、一概に定めることはできないが、通常0～100℃の範囲、好ましくは0℃～室温の範囲で選ばれる。

【0043】本発明の有機電界発光素子は、基板上に陽極、少なくとも1層の有機層および陰極がこの順で積層されて構成される。有機層としては、正孔注入層、正孔輸送層、発光層および電子注入層などが挙げられる。本発明の有機電界発光素子は、これらの有機層のいずれかの1つの層が発光物質として本発明のジスチルアリール誘導体を含有するものである。本発明のジスチルアリール誘導体は強い発光強度を有するので、いずれの有機層に含有されていてもよいが、発光層および電子注入層が好ましく、発光層が特に好ましい。有機電界発光素子は多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防止することができる。図1～3に、本発明の有機電界発光素子の積層構造の一例を示す。

【0044】本発明の有機電界発光素子における好ましい構成としては、有機層が、正孔注入層および正孔輸送層から選択される少なくとも1層、発光層および少なくとも1層の電子注入層からなり、かつ前記有機層のいずれか1つの層が本発明のジスチルアリール誘導体を含有するものが挙げられる。

【0045】また、本発明の有機電界発光素子における他の好ましい構成としては、正孔注入層および正孔輸送層から選択される少なくとも1層、発光層からなり、かつ前記有機層のいずれか1つの層が本発明のジスチルアリール誘導体を含有するものが挙げられる。

【0046】基板としては、通常、有機電界発光素子に用いられている透明なものであれば、特に限定されない。その材質としては、例えば、ガラス、石英、透明プラスチック（ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリサルホン基板など）などが挙げられる。また、これらの基板上に所望の絶縁層や、素子、回路、所望の絶縁膜などが形成されていてもよい。

【0047】本発明における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）ものが好ましい。具体的には、アルミニウム、バナジウム、コバルト、ニッケル、タンゲステン、銀、金などの金属ならびにそれらの合金、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウムなどの金属酸化物ならびにそれらの混合物などが挙げられる。中でも、陽極側から発光を取り出すことが一般的であるため、例えば、インジウムスズ酸化物（ITO）などの透明導電性化合物が好ましい。陽極は、上記電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により薄膜状に形成することができる。また、陽極の膜厚は、使用する電極物質によって異なるが、例えば、10 nm～1 μm程度が好ましい。

【0048】本発明における各種の有機層は、真空蒸着やスパッタリングなどの乾式成膜法、スピンコーティングやディッピングなどの湿式成膜法のいずれかの方法に

12

より形成することができる。各層の膜厚については、特に制限はないが、状況に応じて適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり、効率が悪くなる。一方、膜厚が薄すぎると、ピンホールなどが発生して、電界を印加しても十分な発光輝度が得られない。このため膜厚は通常、5 nm～5 μm程度の範囲で選ぶことが好ましい。

【0049】湿式成膜法の場合、各層を形成する物質をクロロホルム、ジクロロメタン、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどの適切な溶媒に溶解または分散させた液を使用する。また、成膜性向上、膜のピンホール防止などのために、必要に応じて高分子化合物や添加剤を使用してもよい。

【0050】以下、各有機層について説明する。本発明における正孔注入層は、正孔注入物質からなる層であり、陽極から注入された正孔を後述する正孔輸送層および発光層まで伝達する機能を有している。また、本発明における正孔輸送層は、正孔輸送物質からなる層であり、陽極から注入された正孔を後述する発光層まで伝達する機能を有している。このような構造により、陽極から発光層への正孔輸送効率が向上して、発光輝度や発光効率を増加させることができる。

【0051】正孔注入物質および正孔輸送物質としては、有機化合物、無機化合物のいずれであってもよく、従来、光伝導材料において正孔の電荷輸送物質として慣用されているものや電界発光素子の正孔輸送物質に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0052】有機化合物としては、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、ピフェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ポリビニルカルバゾール、ポリシランなどの高分子物質が挙げられる。

【0053】また、無機化合物としては、p型水素化非晶質シリコン、p型水素化非晶質炭化シリコン、p型水素化微結晶性炭化シリコン、p型硫化亜鉛、p型セレン化亜鉛などが挙げられる。正孔注入層および正孔輸送層の膜厚は、使用する正孔注入物質および正孔輸送物質の種類にかかわらず、通常、5 nm～5 μm程度の範囲で選ぶことが好ましい。

【0054】本発明における発光層は、固体状態で発光性を有する発光物質からなり、少なくとも（1）電界印加時に、陽極または正孔注入（輸送）層より正孔を注入することができる注入機能、および陰極または電子注入（輸送）層より電子を注入することができる注入機能、

(8)

13

(2) 注入した電荷(電子または正孔、通常は正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、ならびに(3)電子と正孔の再結合の場を提供し、これにより発光をもたらす機能のいずれか1つ、好ましくはすべての機能を有するものである。なお、正孔の注入されやすさと、電子の注入されやすさとに違いがあっても良いし、電子と正孔の移動度で表わされる輸送機能に大小があってもよいが、少なくともどちらか一方の電荷を移動させることができることが好ましい。発光層の膜厚は、5 nm～5 μm程度の範囲で選ぶことが好ましい。

【0055】また、上記(3)の発光機能については、固体状態での発光性が強いことが望ましい。

【0056】上記の発光層を構成する発光物質としては、高発光特性を達成できる本発明のジスチリルアリーレン誘導体が好ましく、他の発光物質と混合して用いてもよい。また、本発明のジスチリルアリーレン誘導体を、発光層のホスト材料または発光層のドーパント材料として用いてもよい。

【0057】他の公知の発光物質およびドーパント材料としては、例えば、金属オキシノイド化合物(8-ヒドロキシキノリン金属錯体)、プタジエン誘導体、クマリン誘導体、ジシアノメチレンピラン誘導体、フルオレッセイン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、アミノピレン誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、スチリルアミン誘導体、ビススチリルベンゼン誘導体、トリススチルベンゼン誘導体などが挙げられる。

【0058】本発明における電子注入層は、電子注入物質からなるものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような構造により、陰極から発光層への電子注入効率が向上して、発光輝度や発光効率を増加させることができる。電子注入物質としては、有機化合物、無機化合物のいずれであってもよく、従来、光伝導材料において電子注入物質として慣用されているものや電界発光素子の電子注入物質に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用い*

14

*ることができる。

【0059】有機化合物としては、例えば、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンゾキノロン誘導体、ナフトキノロン誘導体、アントキラキノロン誘導体、テトラシアノアントラキノジメタン誘導体、ジフェノキノロン誘導体、フルオレノン誘導体、金属オキシノイド化合物(8-ヒドロキシキノリン金属錯体)などが挙げられる。また、無機化合物としては、n型水素化非晶質炭化シリコン、n型硫化亜鉛、n型セレン化亜鉛などが挙げられる。電子注入層の膜厚は、通常、5 nm～5 μm程度の範囲で選ぶことが好ましい。

【0060】本発明における陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)ものが好ましい。具体的には、リチウム、マグネシウム、カルシウム、チタニウム、イットリウム、ルテニウム、マンガン、銀などの金属ならびにそれらを用いた合金、または混合物などが挙げられる。例えば、マグネシウムと銀を含有するもの、マグネシウムとインジウムを含有するもの、リチウムとアルミニウムを含有するものなどが挙げられる。陰極は、上記電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により薄膜状に形成することができる。また、陰極の膜厚は、使用する電極物質によって異なるが、例えば、10 nm～1 μm程度が好ましい。

【0061】本発明のジスチリルアリーレン誘導体を含有する有機電界発光素子は、発光効率と発光輝度が高く、熱や電流に対して非常に安定であり、各種の表示素子として使用することができる。

【0062】

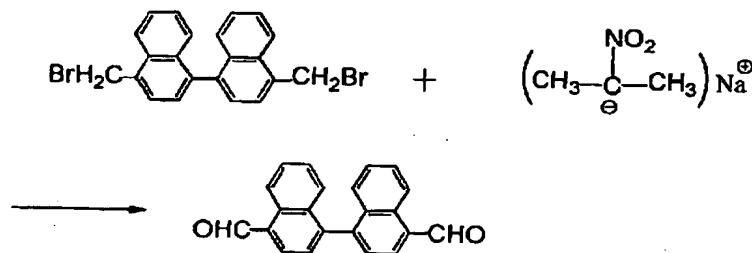
【実施例】本発明を合成例および実施例によりさらに詳細に説明するが、これらの合成例および実施例により本発明が限定されるものではない。

【0063】合成例1〔化合物(1)の合成〕

(合成工程1)下記の反応式にしたがってホルミル体を合成した。

【0064】

【化8】



【0065】まず、1-ブロモ-4-メチルナフタレンをマグネシウムと反応させて対応するグリニャール化合物に転化し、次いでニッケル含有触媒としてNi(PPh₃)₂Cl₂を用いて還元的にカップリング反応をさせて、4,4'-ジメチル-1,1'-ビナフチルを得

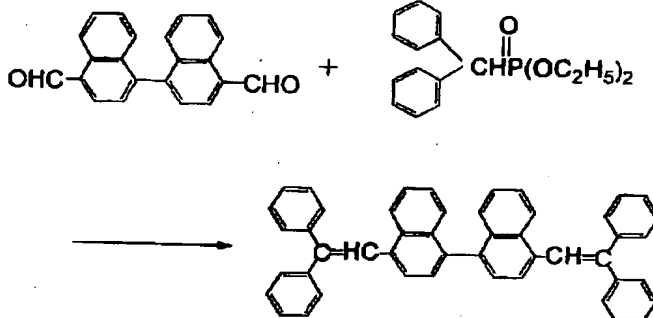
た。得られた4,4'-ジメチル-1,1'-ビナフチルのメチル基をN-プロモスクシンイミドを用いて臭素化して、4,4'-ビス(プロモメチル)-1,1'-ビナフチル20 gを得た。

【0066】4,4'-ビス(プロモメチル)-1,

(9)

15

1'-ビナフチル10.0g ($2.27 \times 10^{-2} \text{mol}$) をジメチルスルホキシド (DMSO) 140ml に懸濁し、これに2-ニトロプロパン7.38g ($8.29 \times 10^{-2} \text{mol}$) と金属ナトリウム1.32g ($5.74 \times 10^{-2} \text{mol}$) のエタノール溶液80mlを加えて60℃で反応させた後、エタノールで洗浄し、ホルミ*



【0069】N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) 30ml に塩基としてカリウムt-ブトキシド1.16g ($1.03 \times 10^{-2} \text{mol}$) を加え、続いてジフェニルメチルホスホン酸ジエチル3.13g ($1.03 \times 10^{-2} \text{mol}$) を氷冷下0℃で加えた。この溶液を合成工程1で得られたホルミル体800mg ($2.58 \times 10^{-3} \text{mol}$) のDMF溶液20mlに氷冷下0℃で滴下し、室温まで戻した後、10時間攪拌した。得られた反応混合物を一晩放置した後、メタノール40mlと水10mlとの混合液を添加し、次いで生じた沈殿を濾取した。得られた固形物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、黄色粉末418mg (収率26.5%)を得た。

*ル体の黄色粉末1.02g (収率14.5%)を得た。
【0067】(合成工程2) 下記の反応式にしたがってジスチリルアリーレン誘導体〔化合物(1)〕を合成した。

【0068】
【化9】

※【0070】得られた黄色粉末の化合物は、下記の分析結果から化合物(1)であることが確認された。

(1) 質量分析 (FD-MS)

$m/z = 610$

(2) 元素分析 $\text{C}_{48}\text{H}_{34}$ として

計算値 (%) C: 94.39 H: 5.61

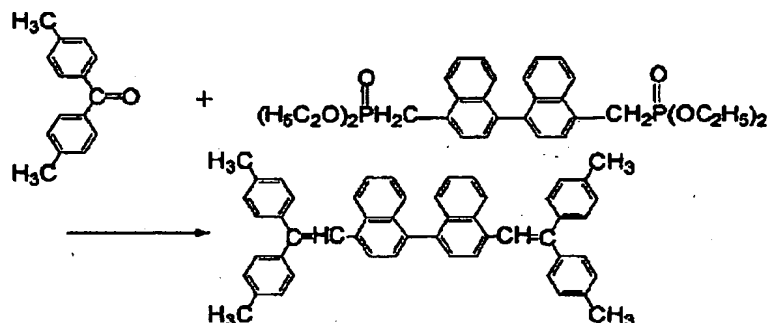
実測値 (%) C: 94.26 H: 5.74

【0071】合成例2〔化合物(2)の合成〕

下記の反応式にしたがってジスチリルアリーレン誘導体〔化合物(2)〕を合成した。

【0072】

【化10】



【0073】合成例1の合成工程1で得られた4,4'-ビス(プロモメチル)-1,1'-ビナフチル10.0g ($2.27 \times 10^{-2} \text{mol}$) と亜リン酸トリエチル9.06g ($5.45 \times 10^{-2} \text{mol}$) とを150℃で反応させた後、n-ヘキサン100mlで洗浄し、ホスホン酸エステルの白色沈殿9.32g (収率74%)を得た。ホスホン酸エステル1.50g ($2.70 \times 10^{-3} \text{mol}$) と4,4'-ジメチルベンゾフェノン1.25g ($5.95 \times 10^{-3} \text{mol}$) とをDMF 30mlに懸濁し、さらに塩基としてカリウムt-ブトキシド673mgを加え、室温にて反応させた。得られた反応混合

物を一晩放置した後、メタノール40mlと水10mlとの混合液を添加し、次いで生じた沈殿を濾取した。得られた固形物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製して、黄色粉末306mg (収率17%)を得た。

【0074】得られた黄色粉末の化合物は、下記の分析結果から化合物(2)であることが確認された。

(1) 質量分析 (FD-MS)

$m/z = 666$

(2) 元素分析 $\text{C}_{52}\text{H}_{42}$ として

計算値 (%) C: 93.65 H: 6.35

(10)

17

実測値 (%) C : 93.44 H : 6.56

【0075】合成例3~8〔化合物(3)~(8)の合成〕

表1に記載のカルボニル化合物とホスホン酸エステルを*

18

*用いる以外は合成例12と同様にして、化合物(3)~(8)の合成を得た。

【0076】

【表1】

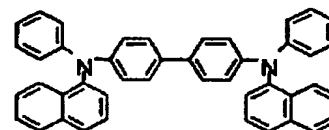
		カルボニル化合物	ホスホン酸エステル	化合物番号
製 造 例	3			(3)
	4			(4)
	5			(5)
	6			(6)
	7			(7)
	8			(8)

【0077】実施例1

以下の有機電界発光素子の作製は、図1を参照して説明する。ITOを蒸着法により20mm×50mm×1.1mmのガラス基板1上に160nmの厚さで製膜したものを透明電極(陽極2)基板とした。これをイソプロピルアルコール中で10分間超音波洗浄し、乾燥窒素ガスを吹きつけて乾燥した。次いで、ITOからなる陽極2上に、下記の式で表されるN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(1-ナフチル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(α -NPD)を真空蒸着によって蒸着速度1~4Å/秒で製膜して、膜厚500Åの正孔輸送層4を形成した。

【0078】

【化11】

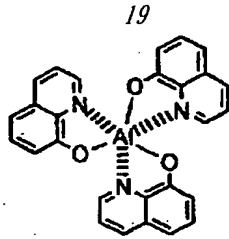


【0079】次に、正孔輸送層4上に、化合物(1)を真空蒸着によって蒸着速度1~4Å/秒で製膜して、膜厚500Åの発光層5を形成した。次いで、発光層5上に、下記の式で表されるトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)(Alq3)を真空蒸着によって蒸着速度1~4Å/秒で製膜して、膜厚500Åの電子注入層6を形成した。

【0080】

【化12】

(11)



【0081】最後に、電子注入層6上に、MgとAgとの比率が10:1の合金になるように、MgとAgとを同時蒸着して、膜厚1000Åの陰極7を形成した。なお、上記の蒸着はいずれも真空度 4.0×10^{-6} Torrで行なった。このようにして作製した有機電界発光素子(EL1)について、ITO電極をプラス、Mg:Ag電極をマイナスにバイアスして、発光させたときの輝*

20

*度(cd/m^2)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm^2)と共に表2に示す。

【0082】発光色は青緑色であり、分光測定を行った結果、図4に示す482nmに発光極大を有するスペクトルを得て、化合物(1)のELスペクトルと同じことから発光が化合物(1)によるものであることを確認した。また、EL1を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL1中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

【0083】

【表2】

素子名	印可電圧(V)	電流密度(mA/cm^2)	輝度(cd/m^2)	発光色
EL1	26	320	1080	青緑
EL2	24	290	1100	青緑
EL3	25	310	990	青緑
EL4	25	320	920	青緑
EL5	25	300	1100	青緑
EL6	26	290	970	青緑
EL7	25	330	1010	青緑
EL8	26	340	1120	青緑
EL9	25	360	1200	青緑
EL10	27	330	1040	青緑
EL11	25	300	1310	緑
EL12	23	340	1490	緑

【0084】実施例2~8

発光層5として化合物(1)の代わりに化合物(2)~(8)を用いる以外は実施例1と同様にして、有機電界発光素子(EL2~8)を作製した。作製したEL2~8を実施例1と同様にして、輝度(cd/m^2)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm^2)と共に表2に示す。また、EL2~8を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL2~8中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

【0085】実施例9

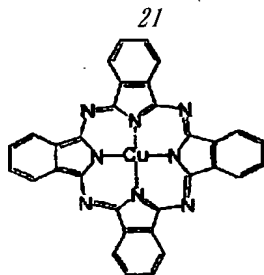
以下の有機電界発光素子の作製は、図2を参照して説明

する。ITOを蒸着法により $20\text{mm} \times 50\text{mm} \times 1.1\text{mm}$ のガラス基板1上に160nmの厚さで製膜したものと透明電極(陽極2)基板とした。これをイソプロピルアルコール中で10分間超音波洗浄し、乾燥窒素ガスを吹きつけて乾燥した。次いで、ITOからなる陽極2上に、下記の式で表される α -銅フタロシアニン($\alpha\text{-CuPc}$)を真空蒸着によって蒸着速度1~4Å/秒で製膜して、膜厚250Åの正孔注入層3を形成した。

【0086】

【化13】

(12)



【0087】次に、正孔注入層3上に、実施例1で用いた α -NPDを真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚250 Åの正孔輸送層4を形成した。次に、正孔輸送層4上に、化合物(1)を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの発光層5を形成した。次いで、発光層5上に、実施例1で用いたAlq₃を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの電子注入層6を形成した。最後に、電子注入層6上に、MgとAgとの比率が10:1の合金になるように、MgとAgとを同時蒸着して、膜厚1000 Åの陰極7を形成した。なお、上記の蒸着はいずれも真空度 4.0×10^{-6} Torrで行なった。作製した有機電界発光素子(EL9)について実施例1と同様にして、輝度(c d/m²)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm²)と共に表2に示す。また、EL9を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL9中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

【0088】実施例10

以下の有機電界発光素子の作製は、図3を参照して説明する。ITOを蒸着法により20mm×50mm×1.1mmのガラス基板1上に160nmの厚さで製膜したものを透明電極(陽極2)基板とした。これをイソプロピルアルコール中で10分間超音波洗浄し、乾燥窒素ガスを吹きつけて乾燥した。次いで、ITOからなる陽極2上に、実施例1で用いた α -NPDを真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの正孔輸送層4を形成した。

【0089】次に、正孔輸送層4上に、化合物(1)を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの発光層5を形成した。最後に、発光層5上に、MgとAgとの比率が10:1の合金になるように、MgとAgとを同時蒸着して、膜厚1000 Åの陰極7を形成した。なお、上記の蒸着はいずれも真空度 4.0×10^{-6} Torrで行なった。作製した有機電界発光素子(EL10)について実施例1と同様にして、輝度(c d/m²)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm²)と共に表2に示す。また、EL10を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL10中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

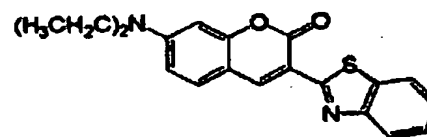
22

【0090】実施例11

以下の有機電界発光素子の作製は、図1を参照して説明する。ITOを蒸着法により20mm×50mm×1.1mmのガラス基板1上に160nmの厚さで製膜したものを透明電極(陽極2)基板とした。これをイソプロピルアルコール中で10分間超音波洗浄し、乾燥窒素ガスを吹きつけて乾燥した。次いで、ITOからなる陽極2上に、実施例1で用いた α -NPDを真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの正孔輸送層4を形成した。次に、正孔輸送層4上に、化合物(1)と下記の式で表されるクマリン6とを真空蒸着によって蒸着速度比30:1で製膜して、膜厚500 Åの発光層5を形成した。

【0091】

【化14】



【0092】次いで、発光層5上に、実施例1で用いたAlq₃を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの電子注入層6を形成した。最後に、電子注入層6上に、MgとAgとの比率が10:1の合金になるように、MgとAgとを同時蒸着して、膜厚1000 Åの陰極7を形成した。なお、上記の蒸着はいずれも真空度 4.0×10^{-6} Torrで行なった。作製した有機電界発光素子(EL11)について実施例1と同様にして、輝度(c d/m²)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm²)と共に表2に示す。また、EL11を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL11中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

【0093】実施例12

以下の有機電界発光素子の作製は、図1を参照して説明する。ITOを蒸着法により20mm×50mm×1.1mmのガラス基板1上に160nmの厚さで製膜したものを透明電極(陽極2)基板とした。これをイソプロピルアルコール中で10分間超音波洗浄し、乾燥窒素ガスを吹きつけて乾燥した。次いで、ITOからなる陽極2上に、実施例1で用いた α -NPDを真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの正孔輸送層4を形成した。次に、正孔輸送層4上に、実施例1で用いたAlq₃を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの発光層5を形成した。

【0094】次いで、発光層5上に、化合物(1)を真空蒸着によって蒸着速度1~4 Å/秒で製膜して、膜厚500 Åの電子注入層6を形成した。最後に、電子注入

(13)

23

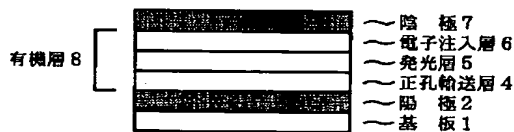
層6上に、MgとAgとの比率が10：1の合金になるように、MgとAgとを同時蒸着して、膜厚1000Åの陰極7を形成した。なお、上記の蒸着はいずれも真空度 4.0×10^{-6} Torrで行なった。作製した有機電界発光素子(EL12)について実施例1と同様にし、輝度(cd/m^2)および発光色を測定した。得られた結果を、印加電圧および電流密度(mA/cm^2)と共に表2に示す。また、EL12を大気中に放置したところ、1ヶ月間経過後においても結晶化は観測されず、EL12中の含有化合物が結晶化していないことがわかった。

【0095】

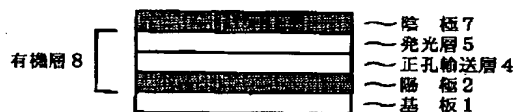
【発明の効果】本発明によれば、低電圧駆動ができ、任意の発光色を得ることができる、大きな発光輝度を有し、繰り返し使用時の安定性(発光寿命および発光安定性)に優れた有機電界発光素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】



【図3】



24

【図1】本発明の有機電界発光素子の模式断面図である(実施例1～8、11および12)。

【図2】本発明の有機電界発光素子の模式断面図である(実施例9)。

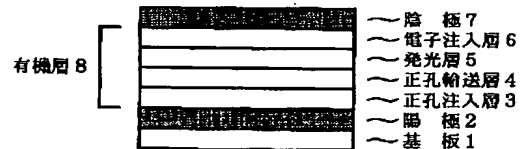
【図3】本発明の有機電界発光素子の模式断面図である(実施例10)。

【図4】本発明の有機電界発光素子の発光スペクトルである(実施例1)。

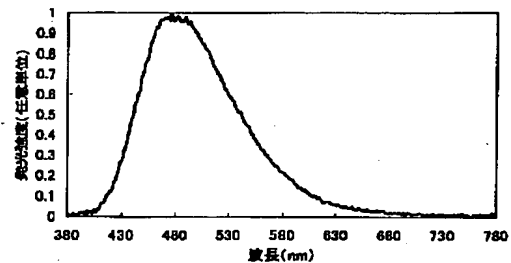
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子注入層
- 7 陰極
- 8 有機層

【図2】



【図4】



フロントページの続き

(72) 発明者 藤田 悦昌

大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号 シ
ャープ株式会社内

(72) 発明者 城戸 淳二

奈良県北葛城郡広陵町馬見北9-4-3

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-327598

(43)Date of publication of application : 28.11.2000

(51)Int.Cl. C07C 15/58

C09K 11/06

H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 2000-046240

(71)Applicant : SHARP CORP
KIDO JUNJI

(22)Date of filing : 23.02.2000

(72)Inventor : KAWASE NORITAKA
FUJITA YOSHIMASA
KIDO JUNJI

(30)Priority

Priority number : 11072250

Priority date : 17.03.1999

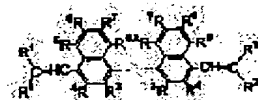
Priority country : JP

(54) DISTYRYLARYLENE DERIVATIVE AND ORGANIC ELECTRIC FIELD LIGHT-GENERATING ELEMENT

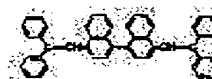
(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new compound which is a distyrylarylene derivative having binaphthylene group in its central skeleton, capable of providing an organic electric field light-generating element capable of being driven in a low electric voltage and obtaining an optional color light generation, having a big light-generating brightness and excellent in stability in its repeated uses.

SOLUTION: This distyrylarylene derivative is a compound of formula I [R1, R2 are each H, a 1-6C alkyl, a (substituted) 6-20C aryl or the like; R3 to R8 are each H, a halogen, a 1-6C alkyl or the like], e.g. a compound of formula II. The compound of the formula I is obtained by performing a condensation reaction of a compound of formula III (e.g.; a compound of formula IV) with a compound of formula V (e.g.; diphenylmethylphosphonic acid diethyl ester) usually in a reaction solvent such as N,N-dimethylformamide, etc., in the presence of a base such as potassium t-butoxide, etc., preferably at 0° C to a room temperature.



I



II



III



IV



V

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of

rejection]

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

*** NOTICES ***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

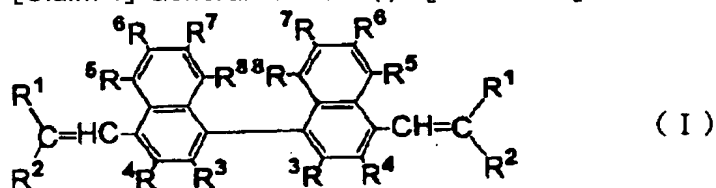
2. **** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] General formula (I) : [Formula 1]



the inside of a formula, R1, and R2 are the same -- or -- differing -- a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6 -- It is the aromatic heterocycle machine of the carbon numbers 2-18 which are not replaced [the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not replaced / substitution or /, substitution, or], and is; R3 -R8. It differs identically or mutually. a hydrogen atom, a halogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, or a hydroxy group -- it is -- the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative expressed

[Claim 2] It sets to a general formula (I) and is R1. And R2 It is a phenyl group and is R3 -R8.

JISUCHIRIRUARI-Wren derivative according to claim 1 which is a hydrogen atom.

[Claim 3] It sets to a general formula (I) and is R1. And R2 It is p-tolyl group and is R3 -R8.

JISUCHIRIRUARI-Wren derivative according to claim 1 which is a hydrogen atom.

[Claim 4] Organic electroluminescence devices which are the organic electroluminescence devices by which the laminating of an anode plate, at least one-layer organic layer, and the cathode was carried out in this order on the substrate, and are characterized by the aforementioned organic layer containing the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of any one publication of the claim 1-3.

[Claim 5] Organic electroluminescence devices according to claim 4 for which a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative is used as a photogene.

[Claim 6] Organic electroluminescence devices according to claim 4 or 5 characterized by for an organic layer consisting of at least one layer, the luminous layer, and at least one-layer electron-injection layer which are chosen from a hole-injection layer and an electron hole transporting bed, and any one layer of the aforementioned organic layer containing a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative.

[Claim 7] Organic electroluminescence devices according to claim 6 in which a luminous layer contains a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative.

[Claim 8] Organic electroluminescence devices according to claim 4 or 5 characterized by for an organic layer consisting of at least one layer and luminous layer which are chosen from a hole-injection layer and an electron hole transporting bed, and any one layer of the aforementioned organic layer containing a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative.

[Claim 9] Organic electroluminescence devices according to claim 8 in which a luminous layer contains a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to a JISUCHIRIRUARI-Wren derivative and organic electroluminescence devices. this invention relates to the thin film type device which emits light, applying electric field to the luminous layer which consists of an organic compound, i.e., the flat-surface light source, and organic electroluminescence devices usable to a display in more detail.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, as electroluminescence devices, the inorganic electroluminescence devices using the inorganic compound which doped Mn which is an emission center, and rare earth elements were common to ZnS, CaS, or SrS etc. which is an II-IV group compound semiconductor. However, it had the trouble that full-color-izing with high driver voltage which needs an alternating current drive was difficult for inorganic electroluminescence devices.

[0003] On the other hand, compared with inorganic electroluminescence devices, luminescence brightness and luminous efficiency with high driver voltage have the trouble that a low and property degradation are remarkable, and the organic electroluminescence devices using the organic compound had not resulted in utilization. However, research of the organic compound for electroluminescence devices which can low-battery-ize driver voltage is made in recent years (for example, refer to C.W.Tang and S.A.VanSlyke, Appl.Phys.Lett., 51, and 913 (1987)).

[0004] Generally electroluminescence devices consist of counterelectrodes of the couple which sandwiched the luminous layer. And by impressing electric field between counterelectrodes, the electron poured in from a cathode side and the electron hole poured in from an anode plate side recombine luminescence in a luminous layer, and in case an energy level returns from a conduction band to a valence band, it is discovered by emitting energy as a light.

[0005] Therefore, since the arbitrary luminescent color can be easily obtained by changing the molecular structure of the organic compound used for the luminous layer in the case of organic electroluminescence devices, promising ** of the use as a full color display device is carried out. Moreover, organic electroluminescence devices have a clear self-luminescence type display, and research of the utilization is made positively (for example, refer to patent official report No. 2554771).

[0006] However, the organic electroluminescence devices by present do not have still sufficient luminescence brightness, although luminescence intensity has been improved by the improvement of composition. Moreover, when using a low-molecular organic compound, it has the big problem that it is inferior to the stability at the time of repeat use that an organic compound crystallizes and a layer exfoliates for the Joule's heat at the time of a drive etc. Therefore, it has bigger luminescence brightness and development of the photogene excellent in the stability at the time of repeat use, the charge transportation (pouring) matter, and organic electroluminescence devices is desired.

[0007]

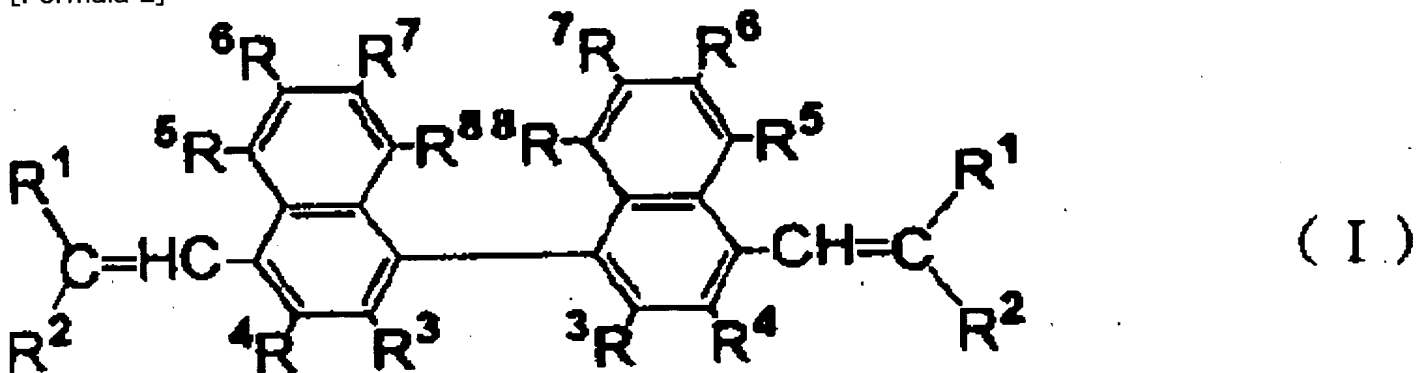
[Problem(s) to be Solved by the Invention] this invention makes it a technical problem to offer the organic electroluminescence devices which a low-battery drive can be performed and can obtain the arbitrary luminescent color and which have big luminescence brightness and were excellent in the stability at the time of repeat use (a luminescence life and luminescence stability).

[0008]

[Means for Solving the Problem] As a result of repeating research wholeheartedly that the organic electroluminescence devices which have the above outstanding features should be developed, the organic electroluminescence devices using the JISUCHIRIRU arylene derivative which has a binaphthylene machine to an os-centrale case had big luminescence brightness, luminescence intensity is strong, and finds out excelling in stability at the time of repeat use, and this invention persons came to complete this invention.

[0009] According to this invention in this way, it is general formula (I): [0010].

[Formula 2]



[0011] the inside of a formula, R1, and R2 are the same -- or -- differing -- a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6 -- It is the aromatic heterocycle machine of the carbon numbers 2-18 which are not replaced [the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not replaced / substitution or /, substitution, or], and is; R3 -R8. It differs identically or mutually. a hydrogen atom, a halogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, or a hydroxy group -- it is -- the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative expressed is offered

[0012] Moreover, according to this invention, it is the organic electroluminescence devices by which the laminating of an anode plate, at least one-layer organic layer, and the cathode was carried out in this order on the substrate, and the organic electroluminescence devices characterized by the aforementioned organic layer containing the above-mentioned JISUCHIRIRUARI-Wren derivative are offered.

[0013]

[Embodiments of the Invention] The JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention is expressed with a general formula (I). R1 in a general formula (I) And R2 As "an alkyl group of carbon numbers 1-6", a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, an isobutyl machine, a sec-butyl, a tert-butyl, n-pentyl machine, an isopentyl machine, a tert-pentyl machine, a neopentyl machine, n-hexyl machine, an iso hexyl machine, etc. are mentioned, for example.

[0014] R1 in a general formula (I) And R2 As "an aryl group of carbon numbers 6-20" For example, a phenyl group, a naphthyl group (1- or 2-), an anthryl (1-, 2-, or 9-) machine, (1-, 2-, 3-, 4-, or 9-) A phenan tolyl group, a pyrenyl (1- or 2-) machine, a biphenyl (2-, 3-, or 4-) machine, a terphenyl machine, a peri (1-, 2-, or 3-) RENIRU machine, etc. are mentioned. As a substituent, a halogen atom, the aryl group of carbon numbers 6-20, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl machine of carbon numbers 7-20, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, substitution or the unsubstituted amino group, and a hydroxy group are mentioned.

[0015] As a halogen atom, a fluorine atom, a chlorine atom, a bromine atom, an iodine atom, etc. are R1 as an aryl group of carbon numbers 6-20. And R2 The thing of instantiation is R1 as an alkyl group of carbon numbers 1-6 again. And R2 The thing of instantiation is mentioned. As an alkoxy group of carbon numbers 1-6, a methoxy machine, an ethoxy basis, n-propoxy group, an isopropoxy group, an n-butoxy machine, an iso butoxy machine, a sec-butoxy machine, a tert-butoxy machine, an n-pentyloxy machine, an isopentyloxy machine, a tert-pentyloxy machine, a neopentyl oxy-basis, an n-hexyloxy machine, an iso hexyloxy machine, etc. are mentioned.

[0016] As an aralkyl machine of carbon numbers 7-20, a benzyl, a tolyl methyl group, a phenylethyl machine, etc. are mentioned, and a phenoxy machine, a naphthoxy machine, etc. are mentioned as an aryloxy group of carbon numbers 6-18, for example. As a substitution amino group, a methylamino machine,

a dimethylamino machine, a diphenylamino machine, etc. are mentioned, for example.

[0017] This "substituent of an aryl group" may be not only a monochrome substitution product but a JI substitution product, and a TORI substitution product. You may be a different substituent and two or more substituents have the same or not the ortho position that the substitution position has steric hindrance, and has a problem in respect of composition but the para position, and the desirable meta position. As a substituent, an electron releasing group is desirable, for example, alkoxy groups, such as alkyl groups, such as a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, and an isopropyl machine, and a methoxy machine, an ethoxy basis, a dimethylamino machine, a diethylamino machine, a phenyl group, etc. are mentioned.

[0018] R1 in a general formula (I) And R2 As an "aromatic heterocycle machine", a pyridyl machine, a quinolyl machine, a carbazolyl machine, an oxadiazolyl machine, a thiadiazolyl machine, a thienyl group, etc. are mentioned, for example. R1 in a general formula (I) And R2 ***** -- also in the above-mentioned substituent, a hydrogen atom, a methyl group, a phenyl group, p-tolyl group, a 4-methoxy-phenyl group, 1-naphthyl group, 2-naphthyl group, and 4-biphenyl machine are desirable, and a phenyl group and especially p-tolyl group are desirable

[0019] R3 -R8 in a general formula (I) As a "halogen atom", a fluorine atom, a chlorine atom, a bromine atom, and an iodine atom are mentioned. R3 -R8 in a general formula (I) As "an alkyl group of carbon numbers 1-6", it is R1. And R2 The thing of instantiation is mentioned.

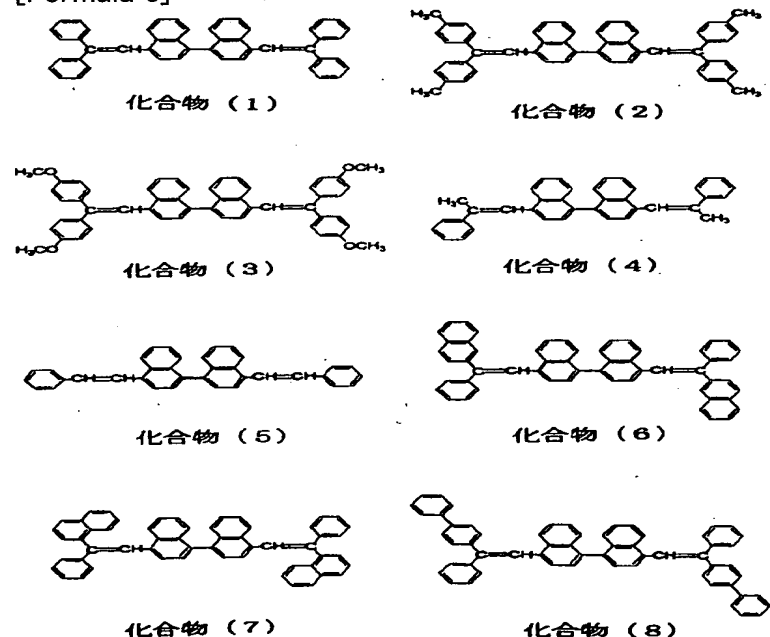
[0020] R3 -R8 in a general formula (I) As "an alkoxy group of carbon numbers 1-6", a methoxy machine, an ethoxy basis, n-propoxy group, an isopropoxy group, an n-butoxy machine, an iso butoxy machine, a sec-butoxy machine, a tert-butoxy machine, an n-pentyloxy machine, an isopentyloxy machine, a tert-pentyloxy machine, a neopentyl oxy-basis, an n-hexyloxy machine, an iso hexyloxy machine, etc. are mentioned. R3 -R8 in a general formula (I) ***** -- especially a hydrogen atom is desirable also in the above-mentioned substituent

[0021] The JISUCHIRIRUARI-Wren derivative expressed with a general formula (I) is the substituent R1 which has two =C=CH-machines in 1 molecule and is combined with this basis. And R2 When it differs, the geometrical isomer of four kinds of combination (a SHISU-SHISU, transformer-SHISU, and SHISU-transformer and a transformer-transformer should put together) exists. The JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention may be which the above-mentioned geometrical isomer, and may be such mixture.

[0022] The example of a JISUCHIRIRU derivative expressed with a general formula (I) is shown below. However, this invention is not limited by instantiation of these compounds.

[0023]

[Formula 3]

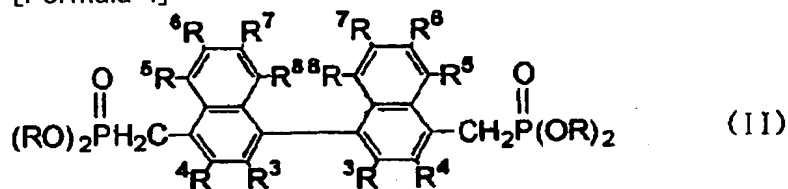


[0024] In the above-mentioned instantiation compound, it is R1. And R2 It is a phenyl group and is R3 -R8. It is R1 to the compound (1) and row which are a hydrogen atom. And R2 It is p-tolyl group and is R3 -R8. The compound (2) which is a hydrogen atom is especially desirable.

[0025] About the synthesis method of the JISUCHIRIRU derivative of this invention, although a well-known method can be used in itself, the following two synthesis methods are advantageous especially in respect of yield.

[0026] (The 1st synthesis method) General formula (II) : [0027]

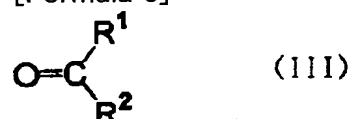
[Formula 4]



[0028] (--- the phosphonate as which R is the alkyl group or phenyl group of carbon numbers 1-4, and; R3 - R8 is expressed in a general formula (they are I) and homonymy) among a formula, and general formula (III):

[0029]

[Formula 5]



[0030] (--- R1 and R2 can compound the JISUCHIRIRU derivative of this invention among a formula by carrying out the condensation reaction of the carbonyl compound expressed with a general formula (they are I) and homonymy) under existence of a base (a Wittig reaction or Wittig-Horner reaction)

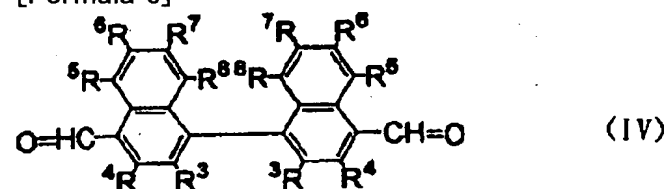
[0031] As "an alkyl group of carbon numbers 1-4" of R in a general formula (II), it is R1 of a general formula (I). And R2 The thing of carbon numbers 1-4 is mentioned among the alkyl groups of instantiation.

[0032] In addition, the phosphonate of a general formula (II) is obtained as follows, for example. first, the Grignard compound which a 1-halo 4-methylnaphthalene derivative is made to react with magnesium in the ether, such as diethylether and a tetrahydrofuran, and corresponds --- converting --- subsequently --- nickel(PPh3)2 Cl2 nickel(PPh3)2 Br2 etc. --- a coupling reaction is carried out in reduction under existence of a nickel content catalyst --- making --- 4 and 4' --- the - dimethyl -1 and 1' - binaphthyl derivative is obtained

[0033] Subsequently, the obtained methyl group of 4, the 4'-dimethyl -1, and a 1'-binaphthyl derivative is halogenated by the halogen or N-halo succinimide, and 4, the 4'-screw (halo methyl) -1, and a 1'-binaphthyl derivative are obtained. Furthermore, 4, the 4'-screw (halo methyl) -1, a 1'-binaphthyl derivative, phosphorous acid TORIMECHIRU, etc. are made to react, and phosphonate is obtained.

[0034] (The 2nd synthesis method) General formula (IV) : [0035]

[Formula 6]



[0036] (--- R3 - carbonyl compound [as which R8 is expressed in a general formula (they are I) and homonymy)] and general formula (V): [0037] [the inside of a formula, and]

[Formula 7]



[0038] (--- among a formula, R is a general formula (II) and homonymy and; R1 and R2 can compound the

JISUCHIRIRU derivative of this invention by carrying out the condensation reaction of the phosphonate expressed with a general formula (they are I) and homonymy) under existence of a base (Wittig-Horner reaction)

[0039] In addition, the compound of a general formula (IV) can make 4 which is the precursor of a general formula (I), the 4'-screw (halo methyl) -1, and a 1'-binaphthyl derivative able to react with the sodium salt (for example, sodium salt of 2-nitropropane) of an aliphatic nitro compound, and can be obtained by making a halo methyl group replace by the aldehyde group.

[0040] In an above-mentioned synthesis method 1 and an above-mentioned synthesis method 2, a reaction solvent is usually used. As a reaction solvent, for example, ether [, such as alcohols, such as a methanol ethanol, an isopropanol a butanol and a 2-methoxyethanol, 1, 2-dimethoxyethane the screw (2-methoxy ethyl) ether, diethylether, a dioxane, and a tetrahydrofuran], toluene, xylene, N.N-dimethylformamide, dimethyl sulfoxide, N-methyl pyrrolidone, 1, and 3-dimethyl-2-imidazolidinone (ethylene urea) etc. is mentioned, and a tetrahydrofuran and dimethyl sulfoxide are desirable especially.

[0041] Moreover, as a base, a sodium hydroxide, a potassium hydroxide, a sodium amide, n-butyl lithium, a sodium methoxide, potassium t-butoxide, etc. are mentioned, for example, and n-butyl lithium and especially potassium t-butoxide are desirable.

[0042] although reaction temperature changes with kinds of raw material to be used etc. and it cannot generally set -- usually -- the range of 0-100 degrees C -- it is preferably chosen in the range of 0 degree C - a room temperature

[0043] On a substrate, the laminating of an anode plate, at least one-layer organic layer, and the cathode is carried out in this order, and the organic electroluminescence devices of this invention are constituted. As an organic layer, a hole-injection layer, an electron hole transporting bed, a luminous layer, an electron-injection layer, etc. are mentioned. As for the organic electroluminescence devices of this invention, one one layer of these organic layers contains the JISUCHIRIRU arylene derivative of this invention as a photogene. Since the JISUCHIRIRU arylene derivative of this invention has strong luminescence intensity, although it may be contained in which organic layer, a luminous layer and its electron-injection layer are desirable, and especially its luminous layer is desirable. By making it multilayer structure, organic electroluminescence devices can prevent the fall of the brightness by quenching, or a life. An example of the laminated structure of the organic electroluminescence devices of this invention is shown in drawing 1 -3.

[0044] That in which an organic layer becomes from at least one layer, the luminous layer, and at least one-layer electron-injection layer which are chosen from a hole-injection layer and an electron hole transporting bed as desirable composition in the organic electroluminescence devices of this invention, and any one layer of the aforementioned organic layer contains the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention is mentioned.

[0045] Moreover, that in which it becomes from at least one layer and luminous layer which are chosen from a hole-injection layer and an electron hole transporting bed as other desirable composition in the organic electroluminescence devices of this invention, and any one layer of the aforementioned organic layer contains the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention is mentioned.

[0046] As a substrate, usually, if [transparent] used for organic electroluminescence devices, it will not be limited especially. As the quality of the material, glass, a quartz, transparent plastics (polyester, a polymethacrylate, a polycarbonate, the poly ape phone substrate, etc.), etc. are mentioned, for example. Moreover, the desired insulating layer, an element, a circuit, a desired insulator layer, etc. may be formed on these substrates.

[0047] As an anode plate in this invention, the large (4eV or more) thing of a work function is desirable. Specifically, those mixture etc. is mentioned to metal rows, such as aluminum, vanadium, cobalt, nickel, a tungsten, silver, and gold, at metallic-oxide rows, such as those alloys, tin oxide, a zinc oxide, and indium oxide. Since it is common to take out luminescence from an anode plate side especially, transparent conductivity compounds, such as an indium-stannic-acid ghost (ITO), are desirable. An anode plate can form the above-mentioned electrode material in the shape of a thin film by methods, such as vacuum

evaporation and sputtering. Moreover, although the thickness of an anode plate changes with electrode material to be used, 10nm – its about 1 micrometer is desirable, for example.

[0048] Various kinds of organic layers in this invention can be formed by one method of the wet forming-membranes methods, such as the dry type forming-membranes methods, such as vacuum deposition and sputtering, spin coating, and dipping. About the thickness of each class, although there is especially no limit, it is necessary to set it as suitable thickness according to a situation. If thickness is too thick, in order to obtain a fixed optical output, big applied voltage will be needed, and efficiency will become bad. On the other hand, if thickness is too thin, even if a pinhole etc. will occur and it will impress electric field, sufficient luminescence brightness is not obtained. For this reason, as for thickness, it is usually desirable to choose in 5nm – about 5 micrometers.

[0049] In the case of the wet forming-membranes method, the liquid which made suitable solvents, such as chloroform, a dichloromethane, a tetrahydrofuran, and a dioxane, dissolve or distribute the matter which forms each class is used. Moreover, you may use a high molecular compound and an additive on a membrane formation disposition if needed for pinhole prevention of a film etc.

[0050] Hereafter, each organic layer is explained. The hole-injection layer in this invention is a layer which consists of hole-injection matter, and has the function transmitted to the electron hole transporting bed which mentions later the electron hole poured in from the anode plate, and a luminous layer. Moreover, the electron hole transporting bed in this invention is a layer which consists of electron hole transportation matter, and has the function transmitted to the luminous layer which mentions later the electron hole poured in from the anode plate. The electron hole transport factor from an anode plate to a luminous layer can improve, and luminescence brightness and luminous efficiency can be made to increase according to such structure.

[0051] As the hole-injection matter and electron hole transportation matter, you may be any of an organic compound and an inorganic compound, and arbitrary things can be conventionally chosen and used out of what is commonly used as charge transportation matter of an electron hole in the photo conductor, or the well-known thing used for the electron hole transportation matter of electroluminescence devices.

[0052] as an organic compound -- for example, a triazole derivative, an OKISA diazole derivative, an imidazole derivative, the poly aryl alkane derivative, a pyrazoline derivative, a pyrazolone derivative, a phenylenediamine derivative, a biphenylene diamine derivative, an arylamine derivative, an oxazole derivative, a styryl anthracene derivative, and full -- me -- non, polymeric materials, such as a derivative, a hydrazone derivative, a stilbene derivative, a polyvinyl carbazole, and polysilane, are mentioned

[0053] Moreover, as an inorganic compound, p type hydrogenation amorphous silicon, p type hydrogenation amorphous carbonization silicon, p type hydrogenation microcrystal nature carbonization silicon, p type zinc sulfide, p type zinc selenide, etc. are mentioned. As for the thickness of a hole-injection layer and an electron hole transporting bed, it is usually desirable to choose in 5nm – about 5 micrometers irrespective of the kind of the hole-injection matter to be used and electron hole transportation matter.

[0054] The luminous layer in this invention consists of a photogene which has a luminescence by the solid state. The pouring function in which an electron hole can be poured in from an anode plate or a hole-injection (transportation) layer at least at the time of (1) electric-field impression, And the pouring function in which an electron can be poured in from cathode or an electron-injection (transportation) layer, (2) Any one is the thing of the function in which provide the transportation function and row to which the poured-in charge (an electron or an electron hole, usually electron hole) is moved by the force of electric field with, the place of the reunion of (3) electrons and an electron hole, and this brings about luminescence which has all functions preferably. In addition, although an electron hole is poured in, an electron may be poured in with easy, there may be a difference in easy and size may be in the transportation function in which it is expressed with the mobility of an electron and an electron hole, it is desirable that one of charges can be moved at least. As for the thickness of a luminous layer, it is desirable to choose in 5nm – about 5 micrometers.

[0055] Moreover, about the luminescence function of the above (3), it is desirable for the luminescence in a solid state to be strong.

[0056] As a photogene which constitutes the above-mentioned luminous layer, the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention, which can attain a high luminescence property is desirable, and it may mix with other photogenes and you may use. Moreover, you may use the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention as the host material of a luminous layer, or a dopant material of a luminous layer.

[0057] As other well-known photogenes and dopant material, a metal oxy-NOIDO compound (8-hydroxyquinoline metal complex), a butadiene derivative, a coumarin derivative, a dicyanomethylene pyran derivative, a fluorescein derivative, a perylene derivative, a peri non derivative, an amino pyrene derivative, a benzoxazole derivative, an OKISA diazole derivative, an oxazole derivative, a thiadiazole derivative, a styryl amine derivative, a screw styryl benzene derivative, a tris still benzene derivative, etc. are mentioned, for example.

[0058] The electron-injection layer in this invention consists of electron-injection matter, and it has the function to transmit the electron poured in from cathode to a luminous layer. The electron-injection efficiency from cathode to a luminous layer can improve, and luminescence brightness and luminous efficiency can be made to increase according to such structure. As electron-injection matter, you may be any of an organic compound and an inorganic compound, and arbitrary things can be conventionally chosen and used out of what is commonly used as electron-injection matter in the photo conductor, or the well-known thing used for the electron-injection matter of electroluminescence devices.

[0059] as an organic compound -- for example, an OKISA diazole derivative, a triazole derivative, a benzoquinone derivative, a naphthoquinone derivative, an ANTOKIRA quinone derivative, a tetracyano anthra quinodimethan derivative, a diphenoquinone derivative, and full -- me -- non, a derivative, a metal oxy-NOIDO compound (8-hydroxyquinoline metal complex), etc. are mentioned Moreover, as an inorganic compound, n type hydrogenation amorphous carbonization silicon, n type zinc sulfide, n type zinc selenide, etc. are mentioned. As for the thickness of an electron-injection layer, it is usually desirable to choose in 5nm - about 5 micrometers.

[0060] As cathode in this invention, the small (4eV or less) thing of a work function is desirable. Specifically, the alloy which used them for metal rows, such as a lithium, magnesium, calcium, titanium, an yttrium, a ruthenium, manganese, and silver, or mixture is mentioned. For example, the thing containing magnesium, the thing and magnesium containing silver, and an indium, the thing containing a lithium and aluminum, etc. are mentioned. Cathode can form the above-mentioned electrode material in the shape of a thin film by methods, such as vacuum evaporation and sputtering. Moreover, although the thickness of cathode changes with electrode material to be used, 10nm - its about 1 micrometer is desirable, for example.

[0061] The organic electroluminescence devices containing the JISUCHIRIRUARI-Wren derivative of this invention are high, and to heat or current, luminous efficiency and luminescence brightness are very stable, and can use them as various kinds of display devices.

[0062]

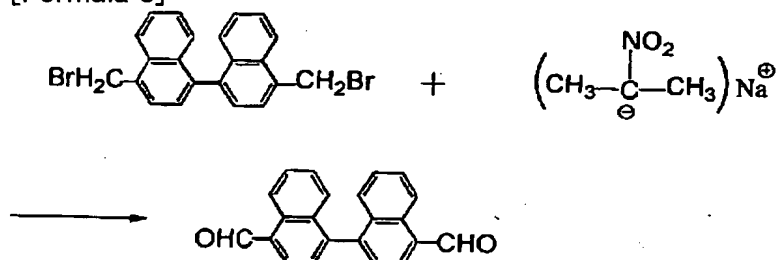
[Example] this invention is not limited by these synthetic examples and examples although a synthetic example and an example explain this invention to a detail further.

[0063] The synthetic example 1 [composition of a compound (1)]

(Synthetic process 1) The HORUMIRU object was compounded according to the following reaction formula.

[0064]

[Formula 8]



[0065] First, it converts into the Grignard compound which a 1-BUROMO-4-methylnaphthalene is made to react with magnesium, and corresponds, and, subsequently is nickel(PPh₃)₂ Cl₂ as a nickel content

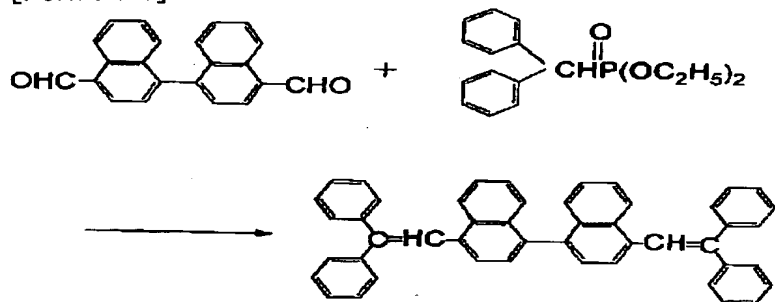
catalyst. It used, the coupling reaction was carried out in reduction, and 4, the 4'-dimethyl -1, and 1'-binaphthyl were obtained. The obtained methyl group of 4, the 4'-dimethyl -1, and 1'-binaphthyl was brominated using N-bromosuccinimide, and 4, the 4'-screw (bromomethyl) -1, and 1'-binaphthyl 20g were obtained.

[0066] 4, the 4'-screw (bromomethyl) -1, and 1'-binaphthyl 10.0g (2.27x10 to 2 mol) are suspended in dimethyl sulfoxide (DMSO) 140ml. After adding 80ml of ethanol solutions of 2-nitropropane 7.38g (8.29x10 to 2 mol), and 1.32g of metallic sodium (5.74x10 to 2 mol) to this and making it react at 60 degrees C, It washed by ethanol and 1.02g (14.5% of yield) of yellow powder of a HORUMIRU object was obtained.

[0067] (Synthetic process 2) According to the following reaction formula, the JISUCHIRIRU arylene derivative [a compound (1)] was compounded.

[0068]

[Formula 9]



[0069] Diphenyl methyl phosphonic acid diethyl 3.13g (1.03x10 to 2 mol) was continuously added potassium t-butoxide 1.16g (1.03x10 to 2 mol) as a base and added to 30ml (DMF) of N.N-dimethylformamide at 0 degree C under ice-cooling. It agitated for 10 hours, after dropping this solution at 20ml of DMF solutions of 800mg of HORUMIRU objects acquired at the synthetic process 1 (2.58x10 to 3 mol) at 0 degree C under ice-cooling and returning it to a room temperature. After leaving the obtained reaction mixture overnight, methanol 40ml and 10ml [of water] mixed liquor was added, and the precipitation subsequently produced was separated. The silica gel column chromatography refined the obtained solid, and 418mg (26.5% of yield) of yellow powder was obtained.

[0070] It was checked from the analysis result of the following [compound / of the obtained yellow powder] that it is a compound (1).

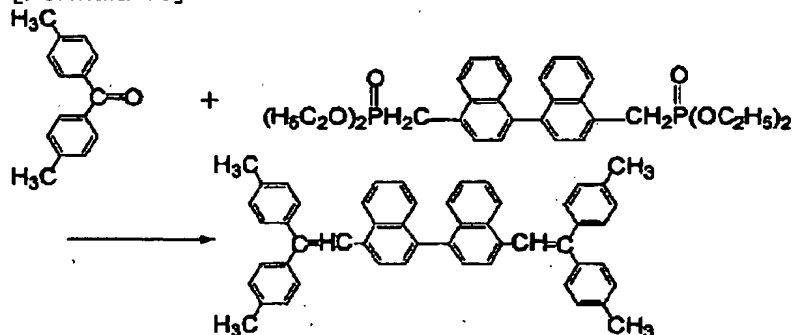
(1) Mass analysis (FD-MS)

m/z=610 (2) elemental analysis It is calculated value as C₄₈H₃₄ (%). C:94.39 H:5.61 actual measurement (%) C:94.26 H:5.74 [0071] The synthetic example 2 [composition of a compound (2)]

According to the following reaction formula, the JISUCHIRIRU arylene derivative [a compound (2)] was compounded.

[0072]

[Formula 10]



[0073] After making 4, the 4'-screw (bromomethyl) -1, and 1'-binaphthyl 10.0g (2.27x10 to 2 mol), and phosphorous acid triethyl 9.06g (5.45x10 to 2 mol) obtained at the synthetic process 1 of the synthetic example 1 react at 150 degrees C, it washed by n-hexane 100ml and 9.32g (74% of yield) of white precipitation of phosphonate was obtained. Phosphonateg [1.50] (2.70x10 to 3 mol) and 4 and 4'-

dimethylbenzo phenon 1.25g (5.95×10^{-3} mol) was suspended in DMF 30ml, potassium t-butoxide 673mg was further added as a base, and it was made to react at a room temperature. After leaving the obtained reaction mixture overnight, methanol 40ml and 10ml [of water] mixed liquor was added, and the precipitation subsequently produced was separated. The silica gel column chromatography refined the obtained solid, and 306mg (17% of yield) of yellow powder was obtained.

[0074] It was checked from the analysis result of the following [compound / of the obtained yellow powder] that it is a compound (2).

(1) Mass analysis (FD-MS)

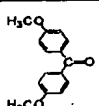
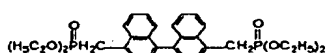

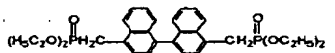

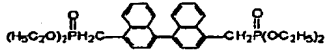

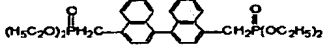

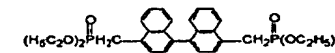

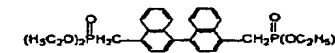
$m/z=666$ (2) elemental analysis It is calculated value as $C_{52}H_{42}$ (%). C:93.65 H:6.35 actual measurement (%)

C:93.44 H:6.56 [0075] The synthetic examples 3-8 [composition of compound (3) - (8)]

Composition of compound (3) - (8) was obtained like the synthetic example 12 except using the carbonyl compound and phosphonate of a publication for Table 1.

[0076]

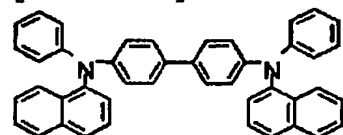
[Table 1]

		カルボニル化合物	ホスホン酸エステル	化合物番号
製 造 例	3			(3)
	4			(4)
	5			(5)
	6			(6)
	7			(7)
	8			(8)

[0077] Production of one or less-example organic electroluminescence devices is explained with reference to drawing 1. What produced ITO by the thickness of 160nm by the vacuum deposition on the 20mmx50mmx 1.1mm glass substrate 1 was used as the transparent-electrode (anode plate 2) substrate. This was cleaned ultrasonically for 10 minutes in isopropyl alcohol, and dryness nitrogen gas was sprayed and it dried. subsequently, N and N' which are expressed with the following formula on the anode plate 2 which consists of ITO - diphenyl-N and N' -- the - screw (1-naphthyl) -1 and 1' -- the - biphenyl -4 and 4' - diamine (alpha-NPD) was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron hole transporting bed 4 of 500A of thickness was formed

[0078]

[Formula 11]

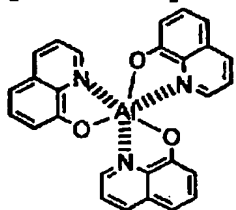


[0079] Next, on the electron hole transporting bed 4, the compound (1) was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the luminous layer 5 of 500A of thickness was

formed. Subsequently, on the luminous layer 5, the tris (8-quinolinolato) aluminum (III) (Alq3) expressed with the following formula was produced by the 1-4Å [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron-injection layer 6 of 500Å of thickness was formed.

[0080]

[Formula 12]



[0081] Finally, on the electron-injection layer 6, the simultaneous vacuum evaporation of Mg and Ag was carried out, and the cathode 7 of 1000Å of thickness was formed so that the ratio of Mg and Ag might become the alloy of 10:1. In addition, each above-mentioned vacuum evaporation was performed by degree of vacuum 4.0×10^{-6} Torr. Thus, the brightness (cd/m²) and the luminescent color at the time of making an ITO electrode plus, making bias of the Mg:Ag electrode to minus, and making light emit about the produced organic electroluminescence devices (EL1) were measured. The obtained result is shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²).

[0082] It checked that the luminescent color was a bluish green color and was what acquires the spectrum which has the luminescence maximum in 482nm shown in drawing 4 as a result of performing spectrometry, and luminescence depends on a compound (1) since it is the same as EL spectrum of a compound (1). Moreover, when EL1 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL1 is not crystallizing.

[0083]

[Table 2]

素子名	印可電圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	輝度 (cd/m ²)	発光色
EL 1	2 6	3 2 0	1 0 8 0	青緑
EL 2	2 4	2 9 0	1 1 0 0	青緑
EL 3	2 5	3 1 0	9 9 0	青緑
EL 4	2 5	3 2 0	9 2 0	青緑
EL 5	2 5	3 0 0	1 1 0 0	青緑
EL 6	2 6	2 9 0	9 7 0	青緑
EL 7	2 5	3 3 0	1 0 1 0	青緑
EL 8	2 6	3 4 0	1 1 2 0	青緑
EL 9	2 5	3 6 0	1 2 0 0	青緑
EL 1 0	2 7	3 3 0	1 0 4 0	青緑
EL 1 1	2 5	3 0 0	1 3 1 0	緑
EL 1 2	2 3	3 4 0	1 4 9 0	緑

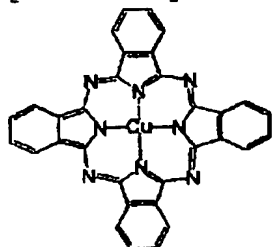
[0084] Organic electroluminescence devices (EL 2-8) were produced like the example 1 except using compound (2) - (8) instead of a compound (1) as two to example 8 luminous layer 5. Brightness (cd/m²) and the luminescent color were measured for produced EL 2-8 like the example 1. The obtained result is

shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²). Moreover, when EL 2-8 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL 2-8 is not crystallizing.

[0085] Production of nine or less-example organic electroluminescence devices is explained with reference to drawing 2. It considered as the thing and transparent-electrode (anode plate 2) substrate which produced ITO by the thickness of 160nm by the vacuum deposition on the 20mmx50mmx 1.1mm glass substrate 1. This was cleaned ultrasonically for 10 minutes in isopropyl alcohol, and dryness nitrogen gas was sprayed and it dried. Subsequently, on the anode plate 2 which consists of ITO, alpha-copper phthalocyanine (alpha-CuPc) expressed with the following formula was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the hole-injection layer 3 of 250A of thickness was formed.

[0086]

[Formula 13]



[0087] Next, on the hole-injection layer 3, alpha-NPD used in the example 1 was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron hole transporting bed 4 of 250A of thickness was formed. Next, on the electron hole transporting bed 4, the compound (1) was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the luminous layer 5 of 500A of thickness was formed. Subsequently, Alq3 used in the example 1 on the luminous layer 5 With vacuum deposition, the film was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate, and the electron-injection layer 6 of 500A of thickness was formed. Finally, on the electron-injection layer 6, the simultaneous vacuum evaporatio of Mg and Ag was carried out, and the cathode 7 of 1000A of thickness was formed so that the ratio of Mg and Ag might become the alloy of 10:1. In addition, each above-mentioned vacuum evaporatio was performed by degree of vacuum 4.0x10⁻⁶Torr. Brightness (cd/m²) and the luminescent color were measured like the example 1 about the produced organic electroluminescence devices (EL9). The obtained result is shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²). Moreover, when EL9 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL9 is not crystallizing.

[0088] Production of ten or less-example organic electroluminescence devices is explained with reference to drawing 3. What produced ITO by the thickness of 160nm by the vacuum deposition on the 20mmx50mmx 1.1mm glass substrate 1 was used as the transparent-electrode (anode plate 2) substrate. This was cleaned ultrasonically for 10 minutes in isopropyl alcohol, and dryness nitrogen gas was sprayed and it dried. Subsequently, on the anode plate 2 which consists of ITO, alpha-NPD used in the example 1 was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron hole transporting bed 4 of 500A of thickness was formed.

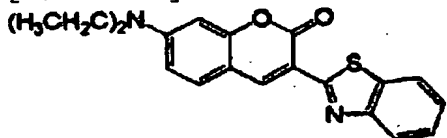
[0089] Next, on the electron hole transporting bed 4, the compound (1) was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the luminous layer 5 of 500A of thickness was formed. Finally, on the luminous layer 5, the simultaneous vacuum evaporatio of Mg and Ag was carried out, and the cathode 7 of 1000A of thickness was formed so that the ratio of Mg and Ag might become the alloy of 10:1. In addition, each above-mentioned vacuum evaporatio was performed by degree of vacuum 4.0x10⁻⁶Torr. Brightness (cd/m²) and the luminescent color were measured like the example 1 about the produced organic electroluminescence devices (EL10). The obtained result is shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²). Moreover, when EL10 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL10 is not crystallizing.

[0090] Production of 11 or less-example organic electroluminescence devices is explained with reference

to drawing 1. What produced ITO by the thickness of 160nm by the vacuum deposition on the 20mmx50mmx 1.1mm glass substrate 1 was used as the transparent-electrode (anode plate 2) substrate. This was cleaned ultrasonically for 10 minutes in isopropyl alcohol, and dryness nitrogen gas was sprayed and it dried. Subsequently, on the anode plate 2 which consists of ITO, alpha-NPD used in the example 1 was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron hole transporting bed 4 of 500A of thickness was formed. Next, on the electron hole transporting bed 4, the coumarin 6 expressed with a compound (1) and the following formula was produced by the evaporation-rate ratio 30:1 with vacuum deposition, and the luminous layer 5 of 500A of thickness was formed.

[0091]

[Formula 14]



[0092] Subsequently, Alq3 used in the example 1 on the luminous layer 5 With vacuum deposition, the film was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate, and the electron-injection layer 6 of 500A of thickness was formed. Finally, on the electron-injection layer 6, the simultaneous vacuum evaporatio of Mg and Ag was carried out, and the cathode 7 of 1000A of thickness was formed so that the ratio of Mg and Ag might become the alloy of 10:1. In addition, each above-mentioned vacuum evaporatio was performed by degree of vacuum 4.0×10^{-6} Torr. Brightness (cd/m²) and the luminescent color were measured like the example 1 about the produced organic electroluminescence devices (EL11). The obtained result is shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²). Moreover, when EL11 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL11 is not crystallizing.

[0093] Production of 12 or less-example organic electroluminescence devices is explained with reference to drawing 1. What produced ITO by the thickness of 160nm by the vacuum deposition on the 20mmx50mmx 1.1mm glass substrate 1 was used as the transparent-electrode (anode plate 2) substrate. This was cleaned ultrasonically for 10 minutes in isopropyl alcohol, and dryness nitrogen gas was sprayed and it dried. Subsequently, on the anode plate 2 which consists of ITO, alpha-NPD used in the example 1 was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron hole transporting bed 4 of 500A of thickness was formed. Next, Alq3 used in the example 1 on the electron hole transporting bed 4 With vacuum deposition, the film was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate by vacuum evaporatio, and the luminous layer 5 of 500A of thickness was formed.

[0094] Subsequently, on the luminous layer 5, the compound (1) was produced by the 1-4A [/second] evaporation rate with vacuum deposition, and the electron-injection layer 6 of 500A of thickness was formed. Finally, on the electron-injection layer 6, the simultaneous vacuum evaporatio of Mg and Ag was carried out, and the cathode 7 of 1000A of thickness was formed so that the ratio of Mg and Ag might become the alloy of 10:1. In addition, each above-mentioned vacuum evaporatio was performed by degree of vacuum 4.0×10^{-6} Torr. Brightness (cd/m²) and the luminescent color were measured like the example 1 about the produced organic electroluminescence devices (EL12). The obtained result is shown in Table 2 with applied voltage and current density (mA/cm²). Moreover, when EL12 was left in the atmosphere, it turns out that crystallization is not observed after progress for one month, and the content compound in EL12 is not crystallizing.

[0095]

[Effect of the Invention] According to this invention, it has the big luminescence brightness which a low-battery drive can be performed and can obtain the arbitrary luminescent color, and organic electroluminescence devices excellent in the stability at the time of repeat use (a luminescence life and luminescence stability) can be offered.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the type section view of the organic electroluminescence devices of this invention (examples 1-8, 11 and 12).

[Drawing 2] It is the type section view of the organic electroluminescence devices of this invention (example 9).

[Drawing 3] It is the type section view of the organic electroluminescence devices of this invention (example 10).

[Drawing 4] It is the emission spectrum of the organic electroluminescence devices of this invention (example 1).

[Description of Notations]

1 Substrate

2 Anode Plate

3 Hole-Injection Layer

4 Electron Hole Transporting Bed

5 Luminous Layer

6 Electron-Injection Layer

7 Cathode

8 Organic Layer

[Translation done.]